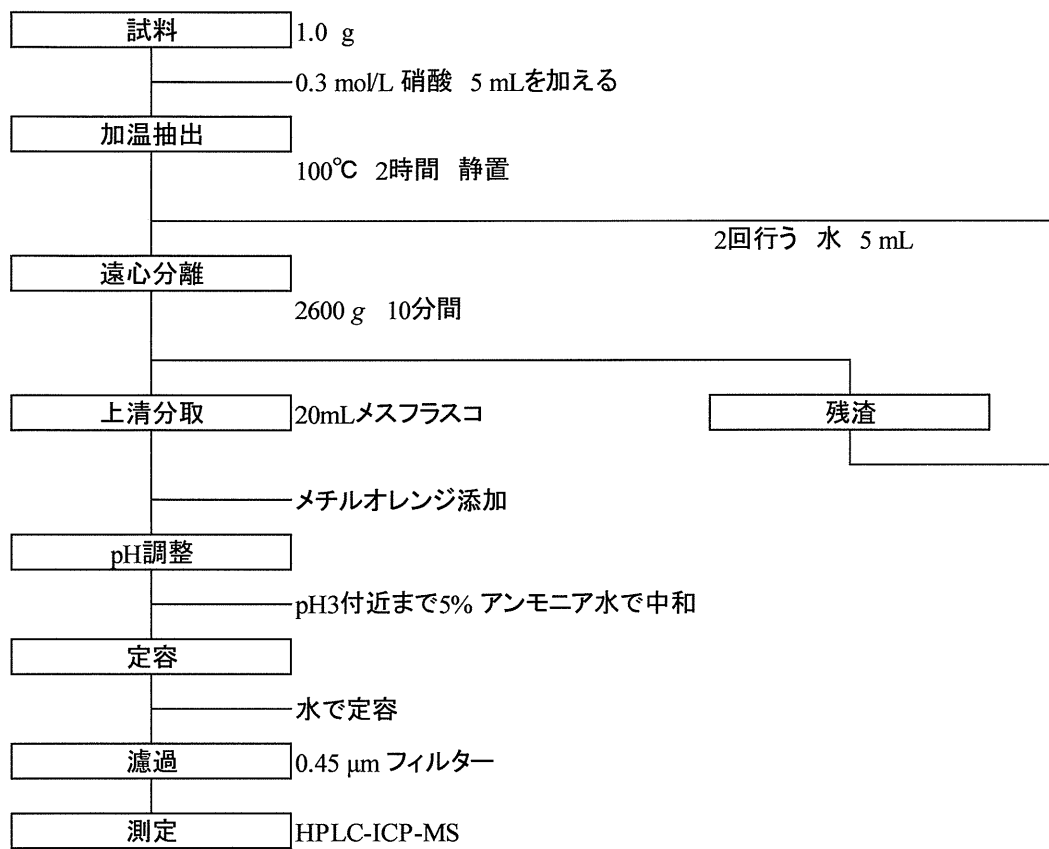


図2 各ヒ素化合物の標準溶液のクロマトグラム(リン酸二水素アンモニウム添加あり)

(a) 移動相 pH3.0 (b) 移動相 pH2.7



HPLC条件

装置: Prominence(島津製作所製)

分離カラム: L-column2 ; 内径4.6 mm 長さ25 cm 粒子径3 μ m (化学物質研究評価機構社製)

移動相: 0.05 %メタノール

12 mM 1-ブタンスルホン酸ナトリウム

1 mM テトラメチルアンモニウムヒドロキシド

5 mM リン酸二水素アンモニウム

4 mM マロン酸溶液(pH2.7)

流速: 0.75 mL/min

カラム温度: 25°C

注入量: 20 μ L

ICP-MS条件

装置: Xシリーズ2(Thermo Fisher Scientific社製)

測定モード: CCTモード(コリジョンモード)

コリジョンガス: He、コリジョンガス流量: 8.5 mL/min

測定質量数: 75

測定ポイント時間: 50 ms

図3 改良 HPLC-ICP-MS 法の概要

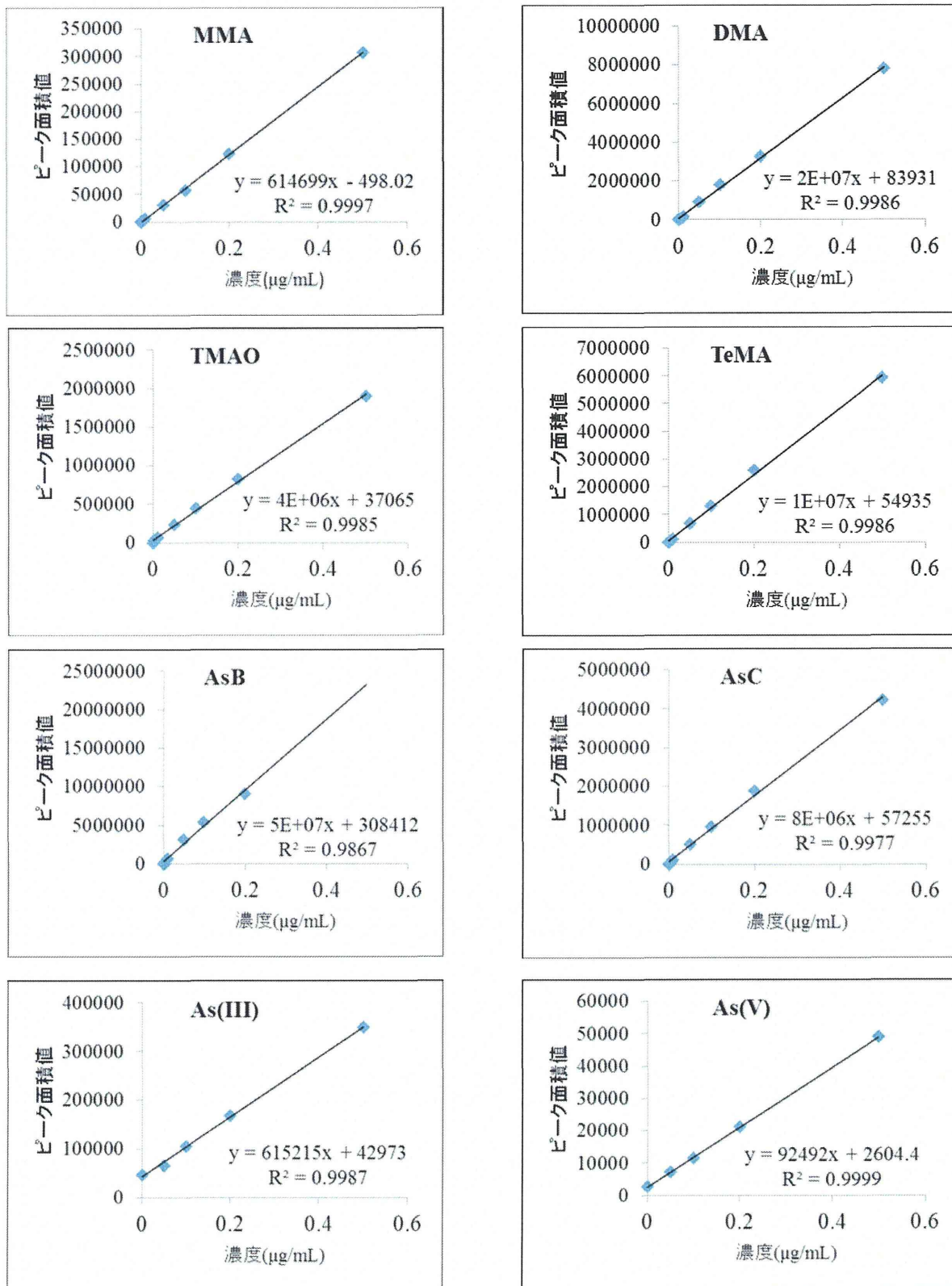
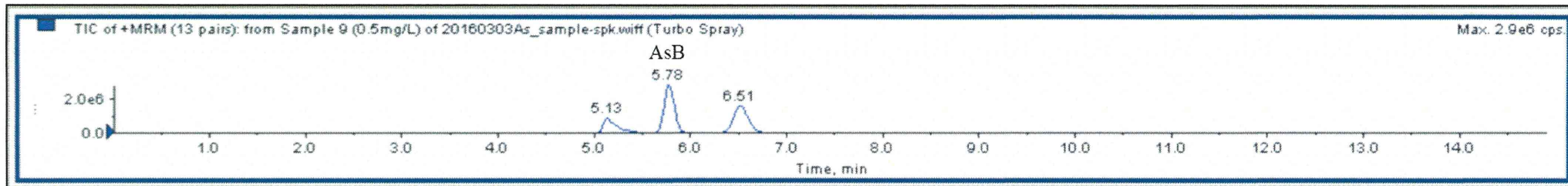
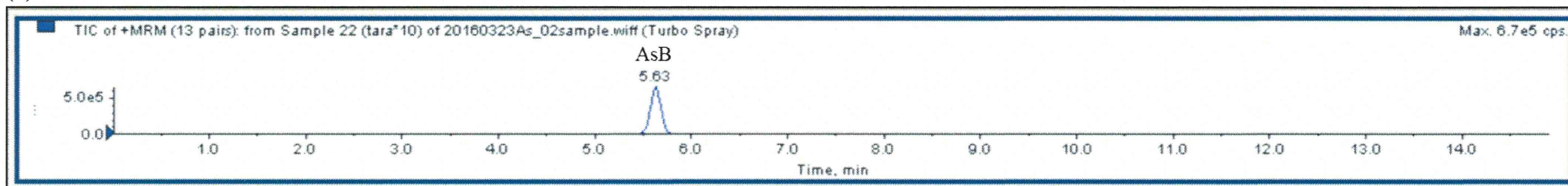


図4 LC-MS/MS法の検量線測定結果

(a)



(b)



(c)

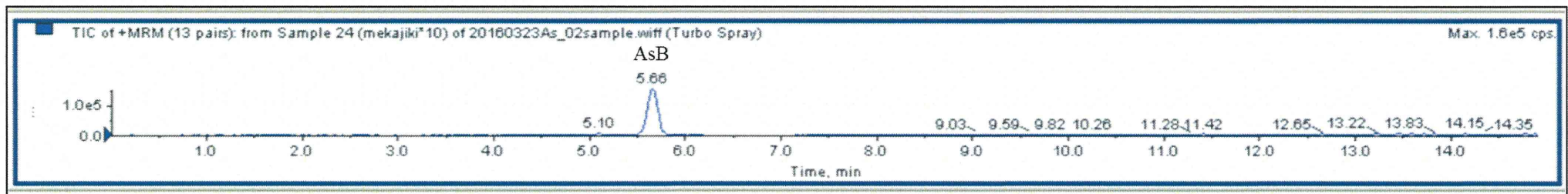
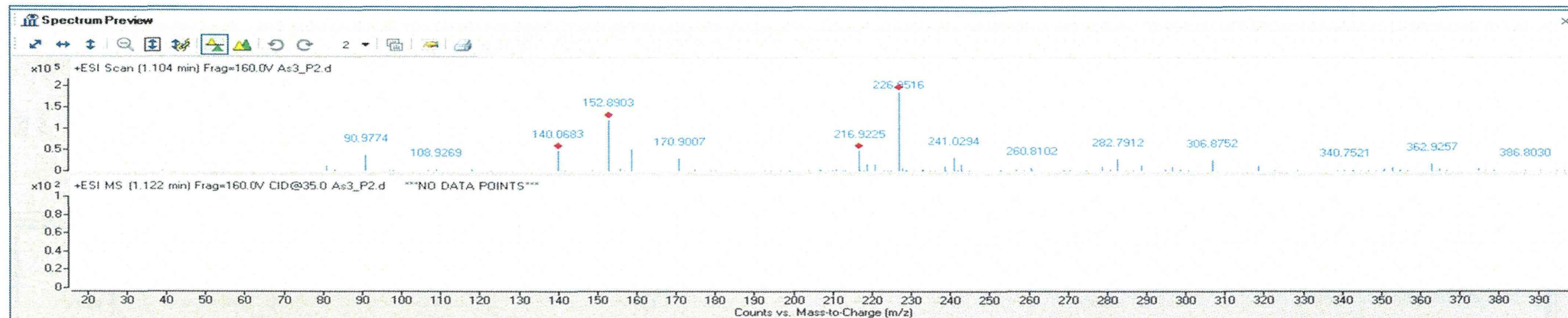


図5 認証標準試料のクロマトグラムの例 (TIC ; ポジティブモード)

(a) 標準溶液 (b) タラ (c) メカジキ

(a)



(b)

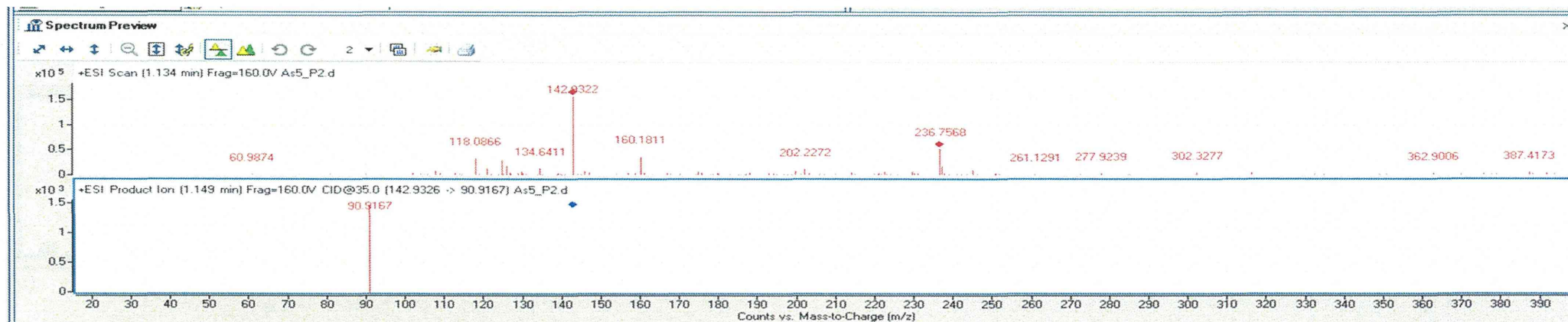


図 6 LC-QTOF/MS による無機ヒ素のマススペクトル (ポジティブモード)

(a) As(III) 保持時間 : 1.104 分 (b) As(V) 保持時間 : 1.134 分

II. 分担研究報告 4

リスクを考慮した精密摂取量推定手法開発に関する研究

松田りえ子

平成 27 年度厚生労働科学研究補助金 食品の安全確保推進研究事業

食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究

リスクを考慮した精密摂取量推定手法開発に関する研究

研究代表者 渡邊敬浩 国立医薬品食品衛生研究所食品部第三室長

研究分担者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部主任研究官

研究要旨

マーケットバスケット(MB)方式により作製したトータルダイエツト(TD)試料は、国民全体の食品一日摂取量平均に基づいて作製されており、そこから推定される有害物質の一日摂取量は全年齢層を平均した値である。しかし、年代別の体重 1kg 当たりの食品一日摂取量は、1-3 歳の幼児で最も大きく、成長と共に小さくなることから、幼児では全年齢平均よりも、体重当たりの有害物質の一日摂取量も多いことが予想される。この予想に基づき、1-3 歳の幼児の有害物質一日摂取量を知るために、幼児の平均的食事を模した TD 試料(TD_{inf})を、平成 25 年から 27 年までの 3 年間に 3 セット作製した。TD_{inf}の作製では全年齢層平均食品摂取量に基づいた TD 試料(TD_{ave})と可能な限り同一の食品を使用した。これら 2 つの TD 試料から推定された元素類、PCBs、ダイオキシン(DXNs)の体重当たり一日摂取量を比較したところ、幼児の体重当たり一日摂取量は全年齢層平均の体重当たり一日摂取量よりも大きくなり、両者の比は体重当たり食品一日摂取量の比に近い値となる場合が多かった。そこで、TD_{ave}により推定した全年齢層平均の体重当たり一日摂取量から、幼児の体重当たり一日摂取量を推定する方法を検討した。その結果、大部分の元素では TD_{ave}から推定した体重当たり一日摂取量に、幼児と全年齢層平均の体重当たりの食品一日摂取量の比を乗じることにより、幼児の一日摂取量を推定することが可能であったが、Al、Sn、Sb、As、Pb は正しく推定できない場合があった。また、Hg、PCBs、DXNs では魚介類の体重当たり一日摂取量の比を乗じて、幼児の体重当たり一日摂取量の推定が可能であった。この方法を用いることにより、過去の摂取量データから、有害物質の摂取量を遡って推定することが可能となった。

研究協力者 鍋師 裕美

国立医薬品食品衛生研究所食品部

A. 研究目的

「食品を介したダイオキシン類等有害物質摂取量の評価とその手法開発に関する研究」では、マーケットバスケット(MB)方式により作製したトータルダイエツト(TD)試料を分析することにより、重金属類、PCBs、ダイオキシン(DXNs)のような有害物質の一日摂取量推定を継続して実施している。TD 試料作製にあたっては、国民健康・栄養調査で得られたそれぞれの食品小分類の一日摂取重量を解析して得た平均値に基づいて各食品を混合している。このような試料の分析値から推定された有害物質一日摂取量は、国民全体の平均的一日摂取量の推定値である。しかし、特定のグループに着目すると、そのグループの食品摂取の量あるいはパターンが全年齢層の平均とは異なることから、これらグループにおける有害物質の一日摂取量は国民全体の平均的な一日摂取量とは異なると予想される。

本分担課題の平成 25 年の研究において、年代別の食品摂取量パターンを比較した結果、体重 1 kg 当たりの食品一日摂取量は、1-3 歳の幼児で最も大きく、成長と共に小さくなり、高齢者でやや増加することが明らかとなった。従って、体重当たりの有害物質一日摂取量も幼児で最も大きくなる可能性が高いと考えられた。平成 25 年から 27 年までに、1-3 歳の幼児の平均的食事を模した TD 試料(TD_{inf})を 3 セット作製した。TD_{inf}の作製では、本研究の分担課題「各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究」で作製された全年齢層平均の食品摂取量に基づいて作製された TD 試料(TD_{ave})と可能な限り共通と

した。

TD_{inf}と TD_{ave}の各種元素、PCBs、DXNs 濃度は、研究課題「各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究」及び「食品からの塩素化ダイオキシン類の摂取量調査研究」中で測定され、それぞれの一日摂取量が推定された。

本研究課題では、TD_{inf}と TD_{ave}から推定された有害物質の体重当たり一日摂取量を比較することにより、TD_{ave}を用いて推定した有害物質一日摂取量から、幼児の一日摂取量を推定する方法論を検討した。

B. 方法

平成 25 年及び 26 年と同様の方法により、1-3 歳の食品小分類毎の一日食品摂取量の平均値を用いた MB 試料(TD_{inf})を作製した。TD_{inf}の作製に使用する食品は、TD_{ave}作製に用いるものと基本的に統一したが、一般に幼児が食べないと考えられる、刺激の強い食品等は、別の食品でおきかえた。食材は東京都世田谷区のスーパーマーケット及び小売店で購入し、13 の食品群に分別し、必要に応じて茹でる・焼く等の調理を行った後に、上記の 1-3 歳の一日摂取量に従って混合し、13 群の試料を作製した。各群の内容は、米(1 群)、雑穀・芋(2 群)、砂糖・菓子(3 群)、油脂(4 群)、豆(5 群)、果実(6 群)、有色野菜(7 群)、その他の野菜・漬物・きのこ・海藻(8 群)、嗜好飲料(9 群)、魚介(10 群)、肉・卵(11 群)、乳(12 群)、調味料(13 群)とした。

TD_{inf}及び TD_{ave}の 15 元素(B, Al, Cr, Co, Ni, As, Se, Mo, Cd, Sn, Sb, Ba, Pb, U, Hg)、

PCBs、DXNs 濃度の分析方法は、「各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究」及び「食品からの塩素化ダイオキシン類の摂取量調査研究」課題の分担報告書に記載されている。

平成 25-27 年度に作製した TD_{ave} 及び TD_{inf} から推定された、各種元素、PCBs、並びに DXNs の全年齢層平均体重当たり一日摂取量と幼児の体重当たり一日摂取量も、上記報告書に記載されている。本分担課題での一日摂取量の比較には、 $ND=0$ とした摂取量推定値を用いた。

C. 結果及び考察

食品の体重当たり一日摂取量

Table 1 に平成 22-24 年の国民健康・栄養調査結果から計算した、南関東における全年齢層平均の体重当たり食品一日摂取量、及び全国の幼児(1-3 歳)の体重当たり一日食品摂取量、及び両者の比を示す。全体として体重当たりの食品一日摂取量は幼児の方が大きく、一日に摂取する体重当たりの全食品摂取量は、幼児が全年齢層平均の 1.77 倍であった。また、食品群ごとに比は異なっており、嗜好飲料の群(9 群)の 1.02 倍から乳の群(12 群)の 4.86 倍の範囲にあった。

元素類の体重当たり一日摂取量

TD_{ave} 及び TD_{inf} は基本的に同じ食品から作製されているため、 TD_{ave} 及び TD_{inf} から推定される体重当たりの有害物質一日摂取量の比も、これに近い値となると予想される。

Table 2 に、平成 25-27(2013-2015)年に TD_{inf} 及び TD_{ave} の元素類分析結果から推定

した幼児と全年齢平均の体重当たりの一日摂取量、及び両者の比を示す。体重当たり一日摂取量の比が、食品の体重当たり一日摂取量の比である 1.77 の $\pm 25\%$ の範囲(1.33-2.23)に入った元素の数は、15 元素中 12-13 であった。元素の体重当たり一日摂取量比がこの範囲に入らなかったのは、2013 年は Al、Sn、2014 年は As、Sn、Sb、2015 年は Sb、Pb、Hg であった。

このように、元素類の体重当たりの一日摂取量の比は、体重当たりの食品摂取重量の比と近い値となったことから、 TD_{ave} を用いて推定した体重当たり一日摂取量から幼児あるいは他の年齢層における体重当たり有害物質摂取量のある程度推定可能と考えられた。

Fig. 1 の●は、横軸に TD_{inf} の濃度から推定された幼児の体重当たり元素類一日摂取量(推定値 0)を、縦軸に TD_{ave} から推定された全年齢平均の体重当たり元素類一日摂取量に、体重当たり食品摂取量の比である 1.77 を乗じた値(推定値 1)をプロットした結果である。一日摂取量のオーダーが同程度の元素をグループとしてプロットした。破線は横軸である推定値 0 の 75%及び 125%を示す。D は C の低摂取量域を拡大した図である。多くの点が、2 本の破線に囲まれた範囲に存在しており、 TD_{ave} から推定した全年齢平均の体重当たり一日摂取量から幼児の体重当たり一日摂取量が推定可能と考えられた。

3 年間に推定した 15 元素の摂取量(計 45)中、推定値 0 と推定値 1 の比が 75-125%の範囲内となった数は 28 であった。この範囲

から大きくはずれたのは、Al(2013年)、Sn(2013年、2014年)、Hg(2014年、2015年)であった。Sb(2014年、2015年)も2つの推定値に大きな差が見られたが、摂取量が非常に小さいため図中のラベルは示していない。

○は TD_{ave} の食品群毎に推定された全年齢平均の体重当たり各元素一日摂取量に、各食品群の体重当たり摂取量の比を乗じた値の和(推定値2)を示している。推定値0と推定値2の比が75-125%の範囲内となった数は37で、推定値1よりも増加した。●と○を比較すると、○の方が、75-125%の範囲の中央に近づく場合が多いが、ほとんど変わらない場合(2013年及び2014年のSn)、75-125%の範囲から遠ざかる場合(2015年のAl)も見られた。

Alの体重当たり一日摂取量は、2013-2015の3年間に、幼児は303 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、40.7 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、608 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、全年齢平均は427 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、29.9 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、305 $\mu\text{g/kg bw/day}$ となり、大きな変動が見られた。各食品群からのAlの体重当たり一日摂取量をFig.2に示す。体重当たり一日摂取量の大きかった、2013年と2015年では、野菜の群(8群)からの摂取が極度に大きくなっていた。各年試料のAl濃度を比較すると、2013年の8群では、 TD_{inf} が54 mg/kg、 TD_{ave} が112 mg/kg、2015年の8群では TD_{inf} が125 mg/kg、 TD_{ave} が81 mg/kgであった。一方、2014年の8群試料のAl濃度は、 TD_{inf} が0.48 mg/kg、 TD_{ave} が0.74 mg/kgであった。体重当たり食品摂取量比からの予測が大きく外れた2013年の TD_{inf} では、8群のAl濃

度が2014年の10倍以上高くなり、また TD_{ave} の濃度が TD_{inf} の2倍以上になったために、 TD_{ave} から推定した幼児の体重当たり一日摂取量が過大に推定されたと考えられる。2015年の8群試料もAl濃度が高いが、 TD_{inf} のAl濃度は TD_{ave} の1/2程度であったため、やや過小な推定となった。

「各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究」報告書には、全国12カ所で作製されたMB試料から推定したAl摂取量が記載されている。これらの値は、全年齢の平均的摂取量であり、3年間の平均値は90.5 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、中央値は44.4 $\mu\text{g/kg bw/day}$ である。この値に比較して、2013年と2015年の TD_{ave} から推定された427 $\mu\text{g/kg bw/day}$ と305 $\mu\text{g/kg bw/day}$ は非常に高い値である。また、 TD_{ave} で摂取に寄与する食品群のパターンを見ても、8群の寄与が非常に大きく、一般的な傾向とは異なった。このことから、2013年と2015年の TD_{inf} と TD_{ave} の8群に特異的にAlを高濃度に含む食品が含まれていたと推測される。

2013年から2015年に TD_{inf} と TD_{ave} の8群に含めた食品を比較すると、2013年と2015年に共通し、2014年に含まれていない食品は青のりであった。2015年に使用した青のりのAl濃度を測定したところ、3,407 mg/kgであり、通常の8群のAl濃度レベルの1 mg/kgのオーダーよりもはるかに高濃度であった。ただし、2013年と2015年の8群中の青のりの割合は同一であり、 TD_{inf} と TD_{ave} のAl濃度の大小関係が逆転したことは説明できない。2015年の TD_{ave} の8群のAl濃度を青のりのAl濃度から計算すると57 mg/kgとなる

が、実際の濃度は 81 mg/kg、 TD_{inf} では計算値が 83 mg/kg、実測値が 125 mg/kg であった。このことから、他にも高濃度に Al を含む食品が試料に含まれていた可能性がある。Al は膨張剤、色止め剤といった食品添加物としても使用されており、他にもこのような添加物を使用した食品が含まれていた可能性もある。このように特異的に高濃度の食品が TD 試料中に存在すると、その食品からの寄与が支配的になっているために、食品の体重当たり一日摂取の比で説明できない変動が起こったと考えられる。

2013-2015 の 3 年間の Sn の体重当たり一日摂取量は、幼児では 0.481 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、0.113 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、0.054 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、全年齢層平均は 0.110 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、0.124 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、0.028 $\mu\text{g/kg bw/day}$ となり、2013 年の幼児の一日摂取量が突出して高くなった。

各食品群からの Sn の体重当たり一日摂取量を Fig.3 に示す。Sn 摂取に寄与する食品群は、年により変化しており、2014 年は豆の群(5 群)、2015 年は野菜の群(8 群)の寄与が大きかった。この中で、2013 年の幼児では肉と卵の群(11 群)が 80%を占め、特異的なパターンを示した。食品中の Sn 濃度は比較的 low、おおむね 0.01 mg/kg 以下であるが、2013 年の 11 群の Sn 濃度は TD_{inf} が 0.113 mg/kg、 TD_{ave} が 0.025 mg/kg、2014 年の 5 群の Sn 濃度は TD_{inf} が 0.059 mg/kg、 TD_{ave} が 0.103 mg/kg であった。

2013 年の 11 群試料は、 TD_{inf} と TD_{ave} の構成食品が全て同一であるが、 TD_{inf} 中での割合が高いハム・ソーセージ類に Sn を高濃度

に含む製品が含まれていたと予想される。2014 年の 5 群の Sn 濃度も高いが、一日当たりの摂取量が 11 群の 3 分の 1 程度であるため、全体への影響が少なかったと考えられる。

「各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究」報告書には、全国 12 カ所で作製された MB 試料から推定した Sn の体重当たり一日摂取量が記載されている。これらの値は、全年齢の平均的一日摂取量であり、3 年間の平均値は 2.05 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、中央値は 0.067 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、最大値は 20.8 $\mu\text{g/kg bw/day}$ である。このように Sn の体重当たり一日摂取量推定値は変動が大きかった。

Sb の体重当たり摂取量は、2013-2015 の 3 年間に、幼児は 0.0595 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、0.0307 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、0.0036 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、全年齢平均は 0.0292 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、0.0020 $\mu\text{g/kg bw/day}$ 、0.0331 $\mu\text{g/kg bw/day}$ となり、2014 年の全年齢平均の摂取量推定値が非常に低くなった。

一般に、TD 試料の Sb 濃度は低く、検出下限値である 0.0005 mg/kg をわずかに超える程度である。このため、Sb が検出下限以下(ND)となる試料の出現頻度は他の元素よりも高い。2014 年の TD_{ave} では 14 群中 12 の群が検出下限以下(ND)となった。一方、 TD_{inf} の各群からは検出下限レベルではあるが濃度が得られた。今回比較に用いた摂取量は、ND=0 として計算しており、 TD_{ave} から推定された摂取量が非常に低くなったため、推定値 1 と 2 も過小な評価となったと考えられる。2013 年は TD_{ave} と TD_{inf} のすべての群

から Sb 濃度が得られており、推定値 1 及び 2 と推定値 0 の差は 20% 以下となった。

Fig.1 D に示すような体重当たり一日摂取量が $0.5 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ を下回るような低濃度の元素 (Co、Hg、U 等) では、体重当たり食品摂取量の比で予測した値からのずれが大きい。これらの元素の摂取量推定では、ND となる試料が多いことに加え、低濃度の分析における精度の低さ、つまり TD_{ave} と TD_{inf} の各食品群の分析値がばらつくことが影響して、摂取量の予測値が外れる可能性も考えられる。

Hg の体重当たり一日摂取量は、2013-2015 の 3 年間に、幼児は $0.375 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、 $0.200 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、 $0.143 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、全年齢平均は $0.227 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、 $0.149 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ 、 $0.125 \mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ となり、変動は小さかった。Fig.4 に示す通り、Hg 摂取に寄与する食品群は魚の群 (10 群) で一定していた。幼児と全年齢層平均の 10 群の体重当たりの一日摂取量比は 1.27 で、食品全体の体重当たりの一日摂取量比である 1.77 よりも小さい。このため、 TD_{ave} から推定した摂取量に 1.77 を乗じた推定値 1 は過大な推定となったと考えられる。全年齢平均摂取量に 1.27 を乗じて幼児の摂取量を推定すると、推定値と実測値の差は 25% 以内となった。また、○で示した推定値 2 と推定値 0 の差はより小さくなった。

PCBs 及び DXNs の体重当たり摂取量

Table 3 には、平成 25-27 (2013-2015) 年に TD_{inf} 及び TD_{ave} の元素類分析結果から推定した、幼児と全年齢平均の体重当たりの PCBs 及び DXNs 一日摂取量、及び両者の

比を示す。PCBs 及び DXNs は、大部分が 10 群 (魚介類) から摂取されることが、これまでの研究により明らかとなっている。これは前述の Hg の場合と同じ状況であるため、幼児の体重当たり一日摂取量と全年齢平均の体重当たり一日摂取量の比は、元素類のように体重当たりの食品一日摂取量の比ではなく、10 群の一日摂取量の比に近い値となると予想される。

Fig.5 は、横軸に TD_{inf} の濃度から推定された幼児の体重当たり PCBs 一日摂取量、縦軸に TD_{ave} から推定された全年齢平均の体重当たり各元素一日摂取量から推定した幼児の体重当たり PCBs 摂取量をプロットした図である。●は体重当たり食品摂取量の比である 1.77 を乗じた推定値 1、●は 10 群摂取量の比である 1.27 を乗じた値、○は 10 群と 11 群の摂取量にそれぞれの幼児と全年齢平均の食品摂取量の比である 1.27 と 1.96 を乗じて足し合わせた値である。食品摂取量の比である 1.77 を乗じた値はやや過大な推定となったが、魚の群 (10 群) の摂取量比である 1.27 を乗じた結果はやや過小となった。肉・卵の群 (11 群) の摂取量を考慮すると、予測がより正確となった。

Fig.6 は幼児の DXNs の摂取量予測を、PCBs と同様に行った結果である。DXNs は、全食品群の濃度が測定されていたため、○は元素類と同様に全食品群それぞれの一日摂取量と、体重当たり食品群摂取量比を用いた推定値 2 である。PCBs と同じく、食品摂取量の比である 1.77 を乗じた値はやや過大な推定となったが、魚の群 (10 群) の摂取量比である 1.27 を乗じた結果、及び推定値

2 は、推定値 0 に近い値となった。

D 結論

本分担研究課題では、できるだけ同一の食材を使用して作製した TD_{inf} 及び TD_{ave} から、元素類、PCBs、DXNs の幼児と全年齢平均の体重当たり一日摂取量を推定した。幼児は体重当たりに摂取する食品の量が多く、その結果として有害物質の体重当たり一日摂取量も全年齢平均よりも多くなる。しかし、幼児の摂取量推定のために、全年齢平均とは別途 MB 試料を作製することは、摂取量推定の効率を低下させるため、全年齢平均試料 TD_{ave} から得られた一日摂取量推定値と幼児と全年齢平均の食品摂取量比を用いて、幼児の一日摂取量を推定する方法を検討した。

Al、Sb、Sn、Hg を除いた元素類では、体重当たりの食品摂取量の幼児と全年齢層平均の比 1.77 と、体重当たりの有害物質一日摂取量の幼児と全年齢層平均の比との差は 25% 以下であった。このことから、全年齢層平均食品摂取量に基づいて調製した TD_{ave} の分析結果に基づき推定した全年齢層平均摂取量に、体重当たり食品摂取量の比である 1.77 を乗じることにより、おおよその幼児の体重当たりの元素類一日摂取量を推定することが可能と考えられた。

Fig.1 に示したように、多くの元素では、全年齢層平均の食品摂取量に基づき調製した TD 試料から推定した一日摂取量に、1.77 (全年齢層平均の体重当たりの食品摂取量に対する幼児の体重当たり食品摂取量の比) を乗じた値 (推定値 1) は、 TD_{inf} から推定した

体重当たり一日摂取量の $\pm 25\%$ の範囲となった。Hg は魚介類の群 (10 群) からの摂取が大部分を占めており、1.77 を乗じると過大な推定となったが、10 群の体重当たり一日摂取量比である 1.27 を乗じることにより、より推定値 0 に近い推定値が得られた。

PCBs 及び DXNs も Hg と同様に、魚介類の群 (10 群) からの摂取が支配的である。このため全年齢層平均の体重当たり一日摂取量に 1.77 を乗じると過大な推定となり、10 群の摂取量比 1.27 を用いることにより、 $\pm 25\%$ の範囲で推定されたが、全体にやや過小な推定値となった。PCBs は肉・卵の群 (11 群) からも摂取されており、幼児においては 11 群の摂取割合が、全年齢平均に比較して大きく、体重当たりの一日摂取量が全年齢平均の 1.96 倍である。このため、10 群の摂取量比のみでの推定は過小となったと考えられる。10 群及び 11 群からの摂取量に体重当たり摂取量比 1.27 と 1.96 を乗じれば、 TD_{inf} から推定した一日摂取量に近づいた。

以上の結果、多くの場合には、 TD_{ave} のそれぞれの食品群から推定した体重当たり一日摂取量に、当該食品群の体重当たり一日摂取量の比を乗じることにより、幼児における一日摂取量を $\pm 25\%$ の範囲で推定できることが示された。また、多くの群から平均的に摂取されている物質の場合には、全食品の体重当たり摂取量の比である 1.77 を乗じて幼児の一日摂取量を推定可能であった。

この手法により、幼児だけでなく、ハイリスクグループと考えられる集団の食品摂取量が分かれば、平均的な一日摂取量の値から、目的のグループの一日摂取量推定が可能と

なる。特定のグループ毎に試料を作製せずに、摂取量を推定できることになるため、効率的な摂取量推定が可能となり、有用な手法と考えられる。また、過去に推定された全年齢平均一日摂取量に基づいて、幼児の一日摂取量を遡って推定することも可能である。

MB 方式による一日摂取量推定の大前提は、全食品あるいはそれぞれの食品群に含まれる全食品において、摂取量推定対象となる物質濃度が、比較的狭い範囲で分布していることである。食品となる生物の成分である物質、環境に存在する物質では、このような前提が満たされると予想される。このような状況では、1つの MB 試料は食品全体から、あるルールに従ってサンプリングされたサンプルであり、ランダムに選択されていれば、それから得られた値の平均値(期待値)は、母平均値に一致すると期待される。つまり、MB 試料を多数作製して推定した一日摂取量の推定値の平均値は、中心極限定理により、試料数を大きくすれば真の一日摂取量に近づき、変動範囲は小さくなる。このように推定された全年齢平均の信頼性の高い摂取量が得られ、体重当たり食品摂取量の比が分かっているならば、年齢、季節、食習慣の違いのような影響を加味した一日摂取量を推定することが可能である。

上記の MB 試料による摂取量推定の大前提が満たされていない、つまり一部の食品に人工的な持ち込みがあり、食品全体での濃度分布が非常に広く、単一とは考えられない分布を持つような有害物質では、中心極限定理によって平均値が正規分布に至るに

は、非常に多数の試料から推定した一日摂取量が必要となり、現実的に不可能である。「各種有害物質の適時及び継続的な摂取量推定研究」で摂取量推定値の分布が極めて広がった、Al、Sn 等はこのような場合に該当する。また、使用頻度が低い農薬等のように全体の一部の食品だけに使用されている場合の残留濃度分布も不均一と予想される。これらの場合、幼児用の試料を作製して推定しても、全年齢の摂取量から推定しても、幼児の摂取量の推定値も正しく推定することは困難であると考えられる。

E 研究発表

1. 論文発表
なし
2. 学会発表
なし

Table 1 全年齢層平均の体重当たり食品摂取量と幼児(1-3歳)の体重当たり食品摂取量

食品群	体重当たり食品摂取量(g/kg bw/day)		比
	全年齢(東京)	幼児(1-3歳)	
1	5.19	8.89	1.71
2	2.96	5.99	2.02
3	0.58	1.65	2.84
4	0.18	0.36	2.00
5	0.87	1.49	1.70
6	1.94	5.50	2.83
7	1.75	3.10	1.77
8	3.40	4.71	1.39
9	10.27	10.45	1.02
10	1.22	1.55	1.27
11	1.98	3.87	1.96
12	2.06	10.02	4.86
13	1.62	2.59	1.61
合計	34.03	60.18	1.77

Table 2 全年齢層平均の体重当たり元素摂取量と幼児(1-3歳)の体重当たり元素摂取量

元素	2013			2014			2015		
	幼児(1-3歳) μg/kg bw/day	全年齢平均 μg/kg bw/day	比	幼児(1-3歳) μg/kg bw/day	全年齢平均 μg/kg bw/day	比	幼児(1-3歳) μg/kg bw/day	全年齢平均 μg/kg bw/day	比
Al	303	427	0.71	40.7	29.9	1.36	608	305	1.99
B	53.9	34.1	1.58	37.7	24.7	1.53	57.5	32.7	1.76
Ba	20.0	13.9	1.44	12.3	7.6	1.62	15.3	9.3	1.64
Ni	5.57	3.83	1.46	3.56	2.60	1.37	6.77	4.11	1.65
As	6.83	4.48	1.53	4.53	3.44	1.31	3.91	2.81	1.39
Se	2.93	1.75	1.67	3.00	1.75	1.71	2.51	1.56	1.61
Mo	6.10	3.67	1.66	5.36	2.92	1.84	5.50	2.91	1.89
Cr	1.20	0.85	1.41	0.41	0.30	1.37	1.47	0.87	1.69
Co	0.425	0.300	1.42	0.204	0.148	1.38	0.436	0.257	1.70
Cd	0.480	0.292	1.64	0.496	0.311	1.60	0.467	0.246	1.90
Sn	0.481	0.110	4.39	0.113	0.124	0.91	0.054	0.028	1.92
Sb	0.060	0.029	2.04	0.031	0.002	15.0	0.037	0.033	1.11
Pb	0.479	0.315	1.52	0.133	0.099	1.35	0.699	0.310	2.25
U	0.053	0.035	1.49	0.018	0.013	1.39	0.037	0.020	1.84
Hg	0.375	0.227	1.65	0.200	0.149	1.34	0.143	0.125	1.14

Table 3 全年齢層平均の体重当たり PCBs及び DXNs 摂取量と幼児(1-3歳)の体重当たり PCBs及び DXNs 摂取量

	幼児(1-3歳) ng/kg bw/day	全年齢平均 ng/kg bw/day	比	幼児(1-3歳) ng/kg bw/day	全年齢平均 ng/kg bw/day	比	幼児(1-3歳) ng/kg bw/day	全年齢平均 ng/kg bw/day	比
PCB	6.73	5.08	1.32	4.80	3.17	1.51	6.30	3.95	1.60
	幼児(1-3歳) pg/kg bw/day	全年齢平均 pg/kg bw/day	比	幼児(1-3歳) pg/kg bw/day	全年齢平均 pg/kg bw/day	比	幼児(1-3歳) pg/kg bw/day	全年齢平均 pg/kg bw/day	比
DXNs	0.46	0.37	1.24	0.40	0.30	1.33	0.53	0.37	1.43

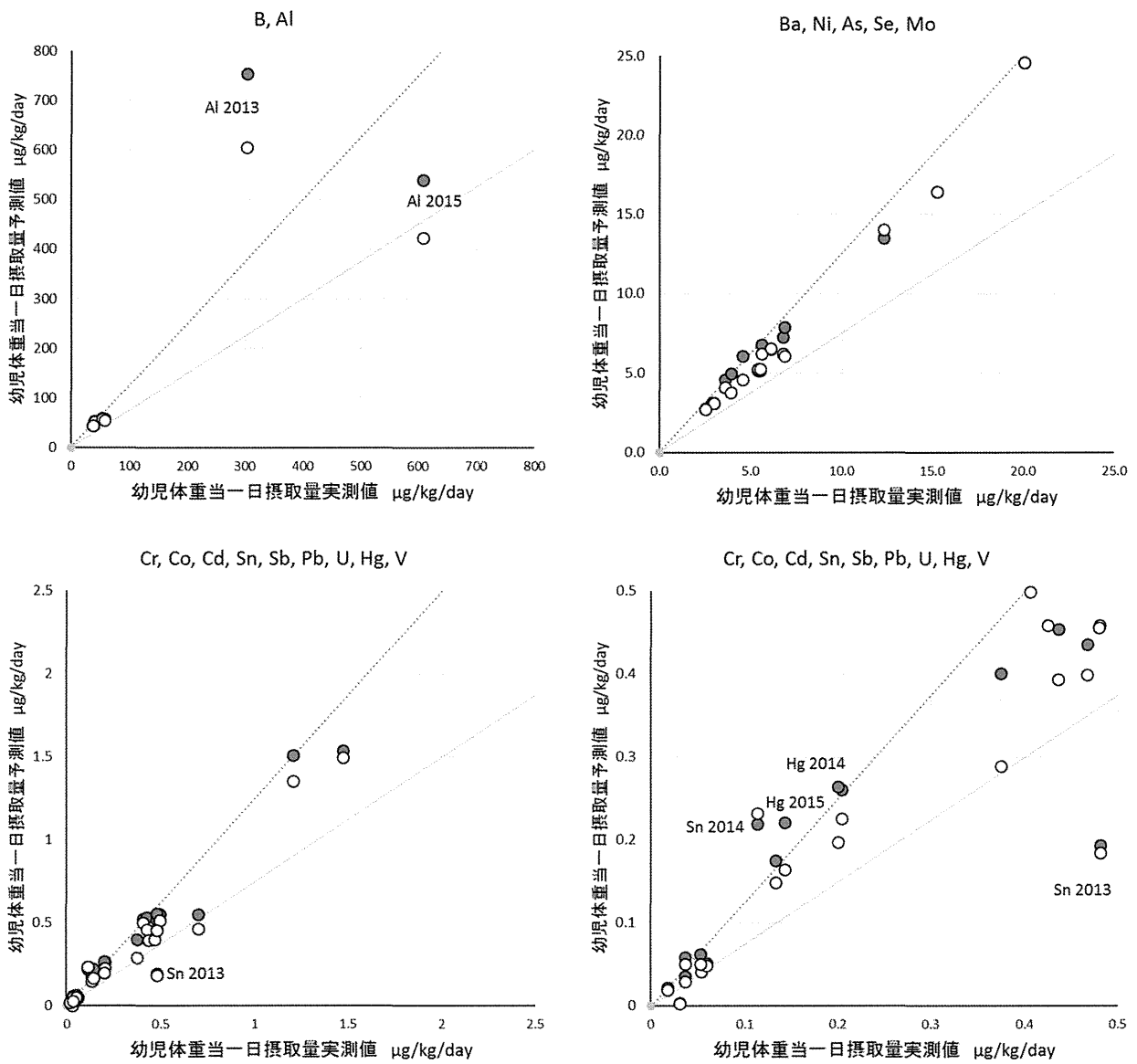


Fig.1 幼児の元素類体重当たり一日摂取量の予測

- 全年齢平均食品群毎の摂取量×食品群の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)の総和
- 全年齢平均摂取量×食品の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)

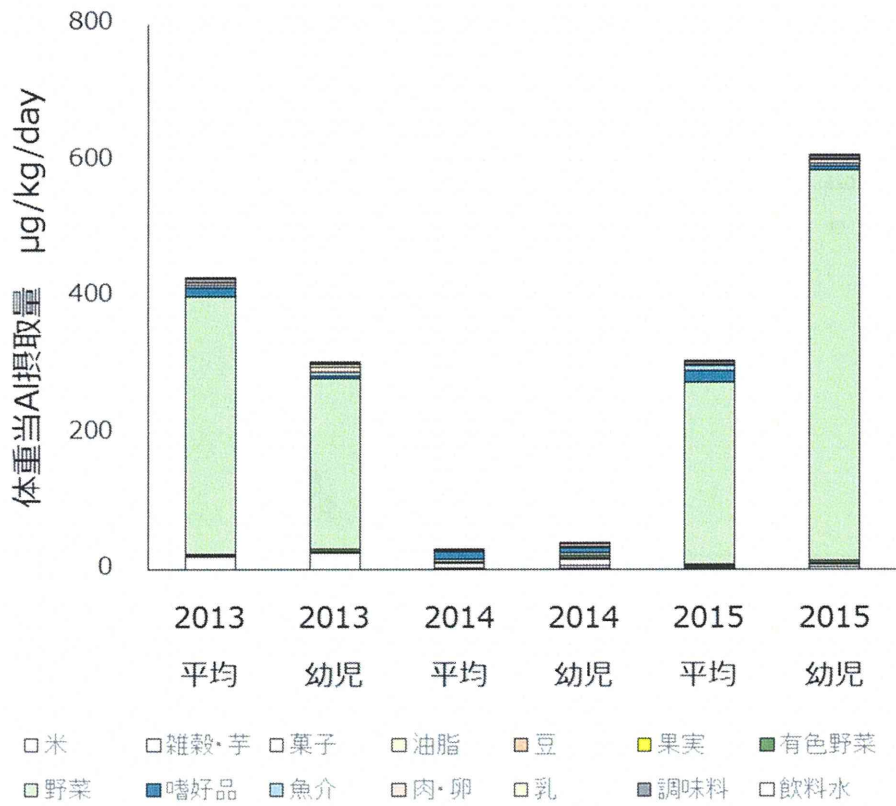


Fig.2 食品群別 Al 摂取量

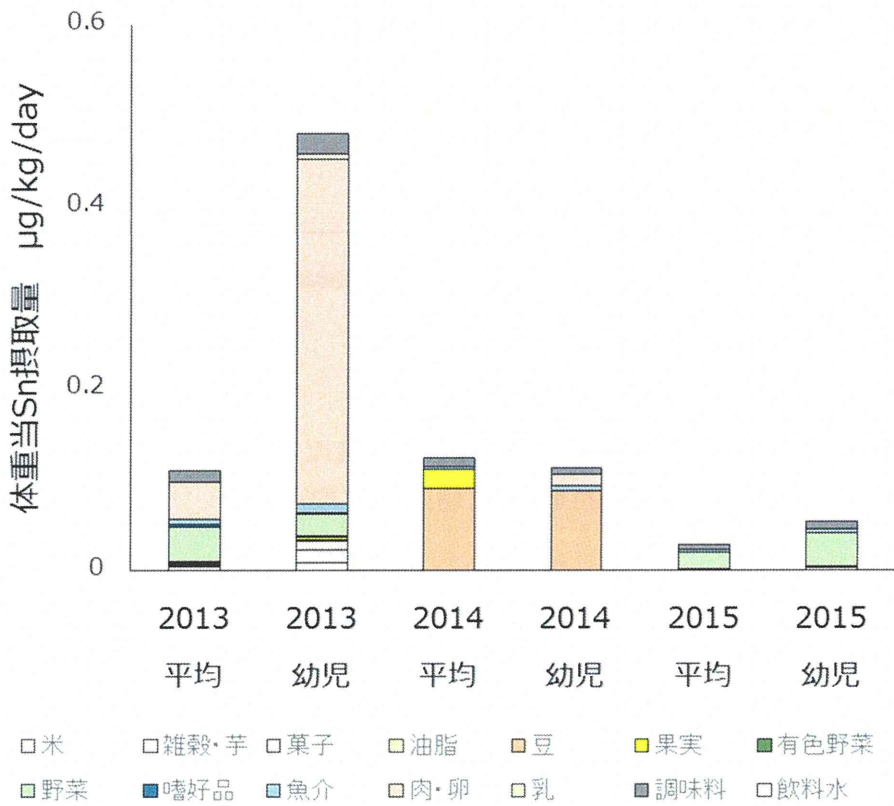


Fig.3 食品群別 Sn 摂取量

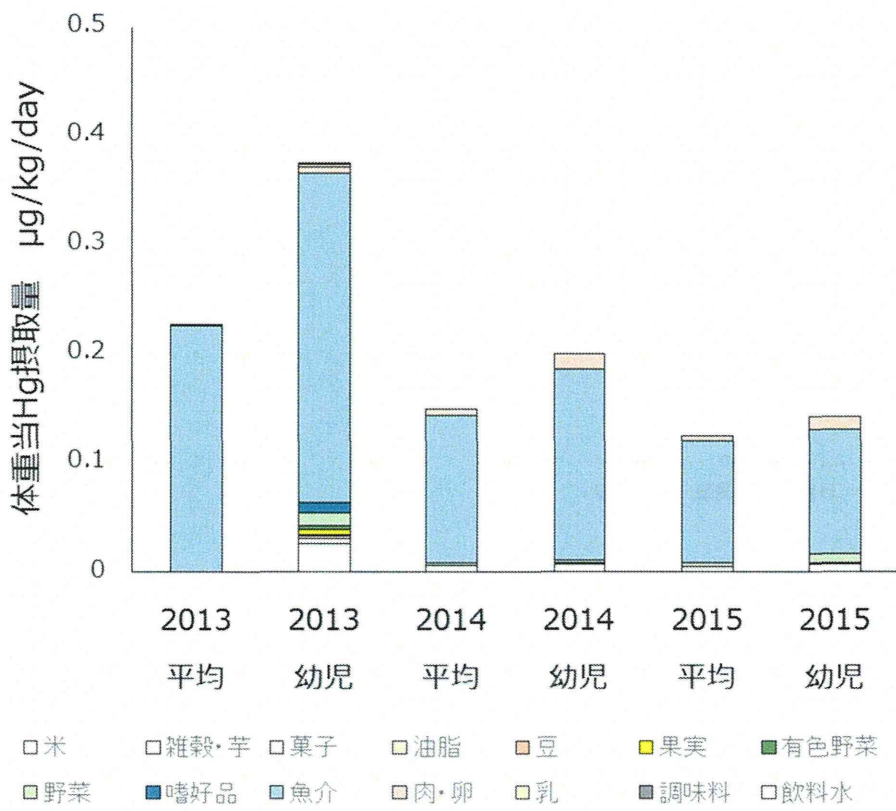


Fig.4 食品群別 Hg 摂取量

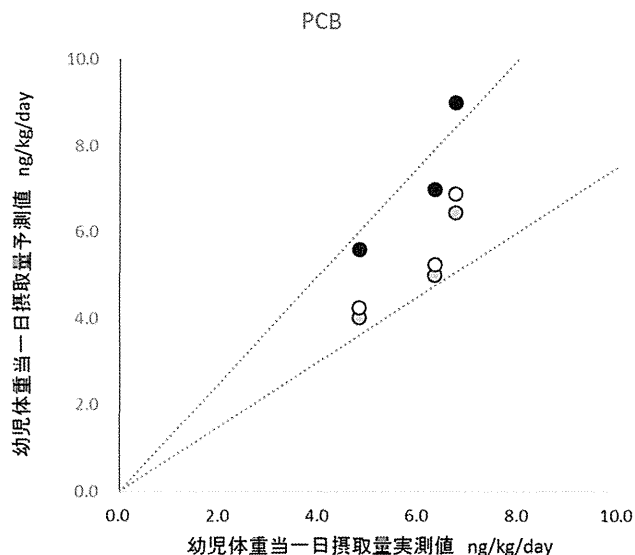


Fig.5 幼児の PCBs 体重当たり一日摂取量の予測

- 全年齢平均食品群毎の摂取量×食品群の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)の総和
- 全年齢平均 10 群の摂取量×10 群の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)+全年齢平均 11 群の摂取量×11 群の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)の総和
- 全年齢平均摂取量×食品の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)

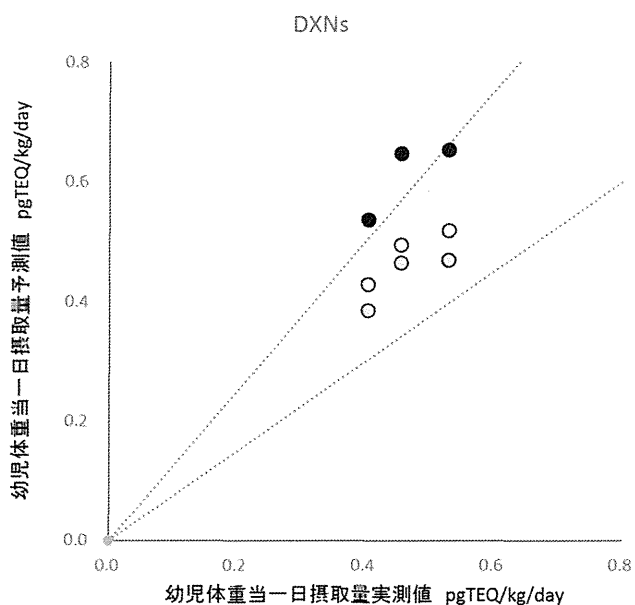


Fig.6 幼児の DXNs 体重当たり一日摂取量の予測

- 全年齢平均食品群毎の摂取量×食品群の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)の総和
- 全年齢平均 10 群の摂取量×10 群の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)+全年齢平均 11 群の摂取量×11 群の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)の総和
- 全年齢平均摂取量×食品の体重当たり摂取量比(幼児/全平均)